



①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 199 04 398 A 1**

⑤① Int. Cl.⁷:
B 01 J 8/00
B 01 J 4/00

②① Aktenzeichen: 199 04 398.1
②② Anmeldetag: 4. 2. 1999
④③ Offenlegungstag: 10. 8. 2000

DE 199 04 398 A 1

⑦① Anmelder:
DBB Fuel Cell Engines GmbH, 73230 Kirchheim, DE

⑦② Erfinder:
Lamla, Oskar, Dipl.-Ing. (FH), 73266 Bissingen, DE;
Schübler, Martin, Dipl.-Phys., 89073 Ulm, DE; Ebert,
Andreas, 74074 Heilbronn, DE

⑤⑥ Entgegenhaltungen:
DE 196 54 361 A1
DE-OS 1 54 510

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ **Stapelreaktor**

⑤⑦ Stapelreaktor zur Durchführung einer katalytischen Reaktion mit einer Anzahl übereinander angeordneter Katalysatorscheiben, wobei die Katalysatorscheiben jeweils Durchbrüche aufweisen, welche unter Bildung eines Eduktkanals, über welchen wenigstens ein zu reagierendes Edukt an die Katalysatorscheiben heranzuführbar ist, miteinander fluchten, wobei der Stapelreaktor eine in dem Eduktkanal sich erstreckende rohrförmige Lanze, in welche das wenigstens eine zu reagierende Edukt stirnseitig einführbar ist, wobei die Lanze entlang ihrer Längserstreckung Mittel zur Ausgabe der eingeführten Edukte aufweist.

DE 199 04 398 A 1

Die vorliegende Erfindung betrifft einen Stapelreaktor zur Durchführung einer katalytischen Reaktion nach dem Oberbegriff des Patentanspruchs 1 sowie eine Lanze zur gleichmäßigen Beaufschlagung aufeinanderliegender Katalysatorscheiben eines Stapelreaktors nach dem Oberbegriff des Patentanspruchs 4.

Aus der DE 197 43 673.0 ist ein aus aufeinandergestapelten Katalysatorscheiben gebildeter Stapelreaktor bekannt. Zur Herstellung eines derartigen Stapelreaktors wird aus mindestens einem Katalysatorpulver durch Verpressen eine einen Formkörper (Katalysatorscheibe) bildende dünne und stark komprimierte Schicht gebildet, wobei dem Katalysatorpulver Kupferpulver, insbesondere dendritisches Kupfer, beige mischt wird. Im Anschluß an das Verpressen wird der Formkörper einer Sinterung unterzogen und anschließend werden die einzelnen Katalysatorscheiben aufeinander gestapelt und zu einem Stapelreaktor verbunden. Bei dem Verbinden der einzelnen Katalysatorscheiben muß auf eine dichte Ausbildung der Fugestellen zwischen den einzelnen Katalysatorscheiben geachtet werden.

Eine typische Anwendung eines derartigen Stapelreaktors ist beispielsweise die Gewinnung von Wasserstoff aus Methanol, welche auf der Gesamtreaktion $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 3\text{H}_2$ basiert. Zur Durchführung dieser Reaktion wird in der Praxis ein Kohlenwasserstoff und Wasserdampf umfassendes Reaktionsgemisch unter Zufuhr von Wärme an einem geeigneten Katalysator entlangeleitet, um in einem zwei- oder mehrstufigen Reaktionsablauf den gewünschten Wasserstoff zu erzeugen. Eine derartige Vorrichtung zur zweistufigen Methanol-Reformierung ist beispielsweise aus der EP 0 687 648 A1 bekannt. In der bekannten Vorrichtung wird das Reaktionsgemisch einem ersten Reaktor zugeführt, in dem nur ein Teilumsatz des Methanols angestrebt wird. Nach dem Durchströmen des ersten Reaktors wird das Gasgemisch, in welchem noch Anteile nicht umgesetzter Edukte enthalten sind, einem zweiten Reaktor zugeleitet, der restumsatzoptimiert aufgebaut ist.

Die Zudosierung der zu reagierenden Edukte erfolgt typischerweise dadurch, daß diese in einen Einlaßkanal, welcher durch fluchtende Anordnung von Durchbrüchen in den einzelnen Katalysatorscheiben des Stapelreaktors gebildet ist, eingeführt wird. Als nachteilig erweist sich hierbei, daß bei einem einseitigen Einbringen bzw. Eindüsen von flüssigen Edukten (beispielsweise von oben) in den Einlaßkanal keine ausreichende Gleichverteilung der Edukte bezüglich der einzelnen Scheiben erreicht wird. Dies bewirkt, daß im Bereich des Kanaleinganges angeordnete Katalysatorscheiben mit relativ großen Eduktmengen beaufschlagt werden, während weiter entfernt von dem Kanaleingang angeordneten Katalysatorscheiben eine relativ kleine Eduktmenge zugeführt wird. Diese Ungleichverteilung kann beispielsweise dazu führen, daß die katalytische Reaktion bei den erstgenannten Katalysatorscheiben in relativ ineffektiver Weise erfolgt, während die letztgenannten Katalysatorscheiben nicht ausreichend ausgelastet sind und nicht ausreichend beheizt werden. Dies führt dazu, daß zur Erzielung einer gewünschten Reaktionsrate relativ große Stapelkatalysator verwendet werden müssen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Schaffung eines Stapelkatalysators, bei welchem eine gleichmäßige Beaufschlagung der einzelnen Katalysatorscheiben mit zugeführten Edukten erzielbar ist.

Diese Aufgabe wird gelöst durch einen Stapelkatalysator mit den Merkmalen des Patentanspruchs 1 sowie eine Lanze zur gleichmäßigen Beaufschlagung aufeinanderliegender Katalysatorscheiben eines Stapelreaktors mit den Merkma-

len des Patentanspruchs 4.

Erfindungsgemäß ist es nun möglich, die einzelnen Scheiben eines Stapelkatalysators gleichmäßig mit zugeführten Edukten zu beaufschlagen. Hierdurch ist eine optimale Dimensionierung eines Stapelreaktors, bei welcher sowohl zu hohe, als auch zu niedrige Beaufschlagungen von Katalysatorscheiben mit zu reagierenden Edukten wirksam vermieden werden können, möglich.

Vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung sind Gegenstand der Unteransprüche.

In einer bevorzugten Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Stapelreaktors bzw. der erfindungsgemäßen Lanze sind die Mittel zur Ausgabe des wenigstens einen eingeführten Eduktes als Löcher in der Mantelwand der Lanze ausgebildet. Hiermit ist in besonders preiswerter Weise eine gleichmäßige Beaufschlagung einzelner Katalysatorscheiben eines Stapelreaktors zur Verfügung gestellt. Hierbei kann das wenigstens eine eingeführte Edukt als aus den Löchern austretender Strahl in die einzelnen Scheibenkanäle eingespritzt werden, wobei für die katalytische Reaktion notwendige weitere Edukte, beispielsweise Luft, parallel zudosiert werden können.

Zweckmäßigerweise ist die Lanze als konzentrisches Doppelrohr ausgebildet, wobei das wenigstens eine, in das Innenrohr des Doppelrohres einführbare Edukt über in der Mantelwand des Innenrohres ausgebildete Löcher oder Düsen in das umgebende Außenrohr austritt, und mittels dem Außenrohr zugeführtem Gas, insbesondere Luft, zerstäubt wird, wobei das derart zerstäubte Edukt über weitere, in der Mantelwand des Außenrohres vorgesehene Löcher oder Düsen, auf die Katalysatorscheiben aufbringbar ist. Hierdurch kann, unter Ausnutzung des Prinzips der Zweistoffdüse, in einfacher und zuverlässiger Weise eine Zerstäubung des zugeführten Eduktes durchgeführt werden. Dadurch, daß die Löcher bzw. Düsen mit sehr kleinem Durchmesser, beispielsweise $> 0,4$ mm, ausgebildet werden können, ist zudem in wirksamer Weise ein Flammrückschlag verhindert, wodurch der sichere Betrieb des erfindungsgemäßen Stapelreaktors gewährleistet ist.

Zweckmäßigerweise sind die Düsen derart dimensioniert, daß zwischen Düse und Mantelwand des Außenrohres ein schmaler Spalt, insbesondere einer Breite von $0,1-0,3$ mm, gebildet wird.

Eine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Stapelreaktors sowie der erfindungsgemäßen Lanze wird nun anhand der beigefügten Zeichnung im einzelnen erläutert. In dieser zeigt:

Fig. 1 in seitlicher Darstellung einen Schnitt durch einen aus mehreren aufeinandergestapelten Katalysatorscheiben gebildeten Stapelreaktor, in welchem eine erfindungsgemäße Lanze, wie sie in Fig. 2 dargestellt ist, einführbar ist;

Fig. 2 in seitlicher Darstellung eine bevorzugte Ausführungsform einer erfindungsgemäßen Lanze, welche beispielsweise in den Stapelreaktor der Fig. 1 einführbar ist;

Fig. 3 eine vergrößerte Ansicht des unteren Teils der Lanze der Fig. 2, und

Fig. 4 eine (stark schematisierte) seitliche Ansicht einer bevorzugten Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Stapelreaktors.

In Fig. 1 ist ein aus einer Anzahl aufeinandergestapelter Katalysatorscheiben 10 gebildeter Stapelreaktor 20 dargestellt. Man erkennt, daß durch ein alternierendes Aufeinanderstapeln mehrerer um jeweils 180° verdrehter Katalysatorscheiben 10 eine Grundstruktur erzeugt wird, bei welcher Vorsprünge 12a bzw. 12b benachbarter Katalysatorscheiben 10 jeweils aufeinander zu liegen kommen. Kontakte zwischen den jeweiligen Katalysatorscheiben 10, welche als Fugestellen bezeichnet werden, sind mit Bezugszeichen 18

versehen.

Aufgrund der Vorsprünge 12a, 12b liegen die Flächen der Katalysatorscheiben 10 beabstandet zueinander, so daß zwischen den einzelnen Katalysatorscheiben 10 Hohlräume gebildet werden, die beispielsweise mit Gitternetzen 16 als Stützeinrichtung ausgefüllt sind.

In dem in Fig. 1 dargestellten Ausführungsbeispiel wird die Struktur des Stapelreaktors 20 nach unten von einer Katalysatorscheibe 10' abgeschlossen, die mittig durchgehend abgeschlossen ist (Bezugszeichen 14).

Die einzelnen Katalysatorscheiben 10 sind jeweils mittig mit Durchbrüchen 11 ausgebildet, welche miteinander fluchten, so daß insgesamt ein sich durch den Stapelreaktor erstreckender Kanal 21 gebildet wird.

In den Kanal 21 ist eine Lanze 30, wie sie beispielsweise in Fig. 2 dargestellt ist, einführbar. Die Lanze 30 ist in Form eines konzentrischen Doppelrohres mit einem Innenrohr 31 und einem Außenrohr (Hülse) 32 ausgebildet. Hierbei ist das Innenrohr 31 innerhalb eines Grundkörpers 33 gehalten. Das Innenrohr 31 ist über seine Längserstreckung mit einer Anzahl von Löchern 34 ausgebildet, welche jeweils mit Düsen 35, welche auf dem das Innenrohr umgebenden Grundkörper 33 gehalten sind, fluchten. Zwischen den Auslassseiten 37 der Düsen 35 und der Mantelwand des Außenrohres 32 ist jeweils ein schmaler Spalt einer Breite von etwa 0,1-0,3 mm ausgebildet. Dieser Spalt ist in der Fig. 3 zu erkennen. Es sei angemerkt, daß der Spalt 37 in seiner Breite weiter variiert werden kann. Das Außenrohr 32 ist seinerseits mit Löchern 50 ausgebildet, welche mit Düsenöffnungen 35a der Düsen fluchten. Insbesondere in Fig. 3 erkennt man, daß die Löcher 50 in dem Außenrohr 32 in Richtung der Außenseite des Rohres 32 sich konisch erweiternd ausgebildet sind.

Die dargestellte Lanze 30 weist in ihrem oberen Bereich einen Flansch 40 auf, mittels dessen die Lanze bei Einführung in einen Kanal eines Stapelreaktors auf der Oberseite des Stapelreaktors anbringbar ist. Der Flansch 40 dient ferner zur Stabilisierung des Doppelrohres.

Über die Stirnseite 42 des Innenrohres ist ein Edukt, beispielsweise Methanol, in das Innenrohr 31 der Lanze 30 einführbar (Pfeil M). Gleichzeitig ist über einen in dem Flansch 40 ausgebildeten Einlaß 41 Luft in das Außenrohr 32 einführbar (Pfeil L).

Mit dem erfindungsgemäßen Lanzenaufbau ist gewährleistet, daß das in das Innenrohr eingebrachte Edukt gleichmäßig über die Löcher 34 bzw. die mit diesen fluchtenden Düsenkörper 35 aus dem Innenrohr 31 austritt. Vor dem anschließenden Austritt des Eduktes aus den mit den Düsenkörpern 35 fluchtenden Löchern 50 im Außenrohr 32 kommt der Eduktstrahl in Wirkverbindung mit der durch das Außenrohr durchströmenden Luft. Hierdurch kommt es zu einer Zerstäubung des Eduktstrahls, so daß insgesamt ein zerstäubtes Edukt aus den Löchern 50 austritt und die einzelnen Katalysatorscheiben beaufschlagt.

Durch die erfindungsgemäße Unter- bzw. Hintereinanderanordnung der jeweiligen Düsenkörper und ihre jeweilige Dimensionierung ist gewährleistet, daß über die gesamte Länge der Lanze 30 ein gleichmäßiger Austritt von zerstäubtem Edukt erfolgt.

Unter Bezugnahme auf Fig. 1 erweist es sich als besonders vorteilhaft, die fluchtenden Löcher bzw. Düsenkörper 34, 35, 50 derart anzuordnen, daß sie auf gleicher Höhe wie die Gitternetze 16 ausgebildet sind. Hiermit ist eine besonders effektive katalytische Umsetzung des Eduktes in dem die Gitternetze jeweils umgebenden Katalysatormaterial erzielt.

Unter Bezugnahme auf Fig. 4 wird nun ein bevorzugtes Ausführungsbeispiel eines erfindungsgemäßen Stapelreak-

tors 20, welcher eine Lanze zur gleichmäßigen Verteilung aufweist, beschrieben.

Hier sind, stark schematisch, einzelne übereinanderliegende Katalysatorscheiben wiederum mit 10 bezeichnet. Zwischen den jeweiligen Katalysatorscheiben ausgebildete Reaktionskanäle sind mit 70 bezeichnet. Bei im wesentlichen runder Ausbildung des Stapelkörpers bilden die Einlaßkanäle 70 jeweils Ringspalte. Die Höhe der Einlaßkanäle beträgt beispielsweise 0,5 mm. In den Eduktkanal 21 des dargestellten Stapelreaktors, der, wie bereits unter Bezugnahme auf Fig. 1 erläutert, durch fluchtende Anordnung von Durchbrüchen in den einzelnen Katalysatorscheiben 10 gebildet ist, ist eine Lanze 30a zur gleichmäßigen Beaufschlagung der aufeinanderliegenden Katalysatorscheiben eingeführt. Die Lanze ist hier stark schematisch dargestellt, wobei auf eine explizite Darstellung des Innenaufbaus der Lanze verzichtet wurde. Es ist bevorzugt, daß die Lanze 30a einen doppelrohrförmigen Aufbau entsprechend der Lanze 30 gemäß Fig. 2 aufweist. Es sei angemerkt, daß anstelle einer Zerstäubung des der Lanze zudosierten Eduktes (schematisch, mittels Löchern 50 in der Außenwandung der Lanze 30a dargestellt) das der Lanze zugeführte Edukt bzw. Flüssigkeitsgemisch als Flüssigkeitsstrahl in die Kanäle 70 der jeweiligen Katalysatorscheiben eingespritzt werden könnte, wobei hierbei mittels nicht dargestellter Luftzuführungsmittel Luft gleichzeitig den Kanälen 70 zudosiert wird.

Patentansprüche

1. Stapelreaktor zur Durchführung einer katalytischen Reaktion mit einer Anzahl übereinander angeordneter Katalysatorscheiben (10), wobei die Katalysatorscheiben (10) jeweils Durchbrüche (11) aufweisen, welche unter Bildung eines Eduktkanals (21), über welchen wenigstens ein zu reagierendes Edukt an die Katalysatorscheiben (10) heranführbar ist, miteinander fluchten, **gekennzeichnet durch** eine in dem Eduktkanal (21) sich erstreckende rohrförmige Lanze (30, 30a), in welche das wenigstens eine zu reagierende Edukt stirnseitig einführbar sind, wobei die Lanze (30, 30a) entlang ihrer Längserstreckung Mittel (34, 35, 50) zur Ausgabe der eingeführten Edukte aufweist.
2. Stapelreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Mittel (3, 4, 35, 50) zur Ausgabe des wenigstens einen eingeführten Eduktes als Löcher (50) in der Mantelwand (32) der Lanze (30) ausgebildet sind.
3. Stapelreaktor nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch eine als konzentrisches Doppelrohr (31, 32) ausgebildete Lanze, wobei in das Innenrohr (31) des Doppelrohres einführbares Edukt über in der Mantelwand des Innenrohres ausgebildete Löcher (34) und/oder Düsen (35) in das konzentrisch angeordnete Außenrohr (32) des Doppelrohres überführbar und mittels dem Außenrohr (32) zugeführten Gases, insbesondere Luft, zerstäubbar ist, wobei das derart zerstäubte Edukt über weitere, in der Mantelwand des Außenrohres (32) vorgesehene Löcher und/oder Düsen auf die die Lanze umgebenden Katalysatorscheiben aufbringbar ist.
4. Stapelreaktor nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen den Düsen (35) und der Mantelwand des Außenrohres (32) ein schmaler Spalt (37), insbesondere einer Breite von 0,1-0,3 mm, ausgebildet ist.
5. Lanze zur gleichmäßigen Beaufschlagung aufeinanderliegender Katalysatorscheiben (10) eines Stapelreaktors mit wenigstens einem Edukt, dadurch gekennzeichnet, daß wenigstens ein zu reagierendes Edukt

stirnseitig in die rohrförmige Lanze einführbar ist, wobei die Lanze entlang ihrer Längserstreckung Mittel (34, 35, 50) zur Ausgabe des wenigstens einen eingeführten Edukts aufweist.

6. Lanze nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Mittel (34, 35, 50) zur Ausgabe des wenigstens einen eingeführten Eduktes als Löcher (50) in der Mantelwand (32) der Lanze ausgebildet sind.

7. Lanze nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß sie als konzentrisches Doppelrohr (31, 32) ausgebildet ist, wobei in das Innenrohr (31) des Doppelrohres einführbares Edukt über in der Mantelwand des Innenrohres ausgebildete Löcher (34) und/ oder Düsen (35) in das konzentrisch angeordnete Außenrohr (32) des Doppelrohres überführbar und mittels dem Außenrohr (32) zugeführtem Gas, insbesondere Luft, zerstäubbar ist, wobei das derart zerstäubte Edukt über weitere, in der Mantelwand des Außenrohres (32) vorgesehene Löcher und/oder Düsen aus der Lanze ausstoßbar ist.

8. Lanze nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen derart dimensioniert sind, daß zwischen den jeweiligen Düsen und der Mantelwand des Außenrohres ein schmaler Spalt, insbesondere einer Breite von 0,1–0,3 mm, gebildet wird.

Hierzu 4 Seite(n) Zeichnungen

30

35

40

45

50

55

60

65

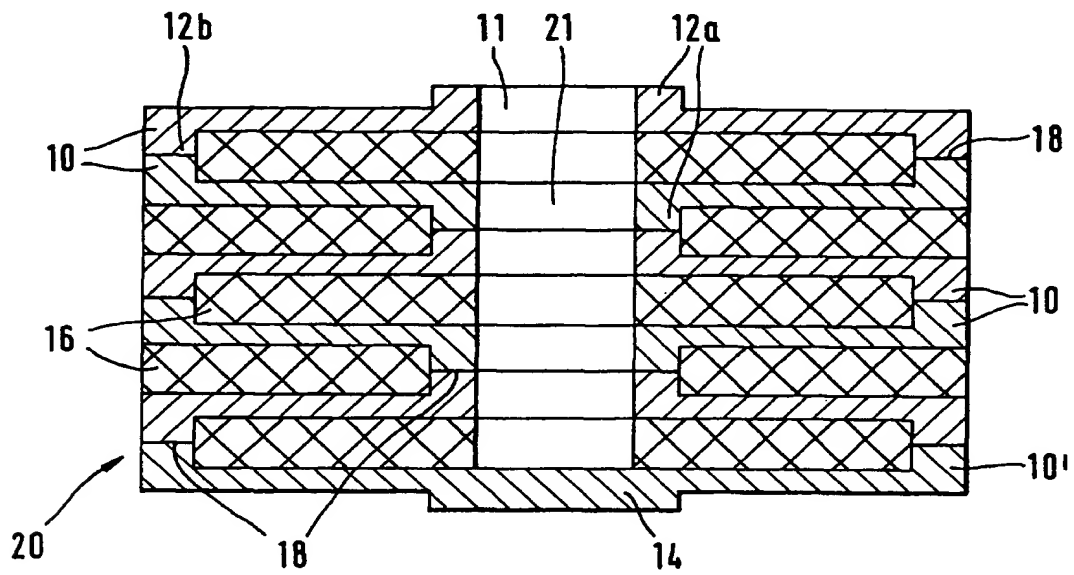
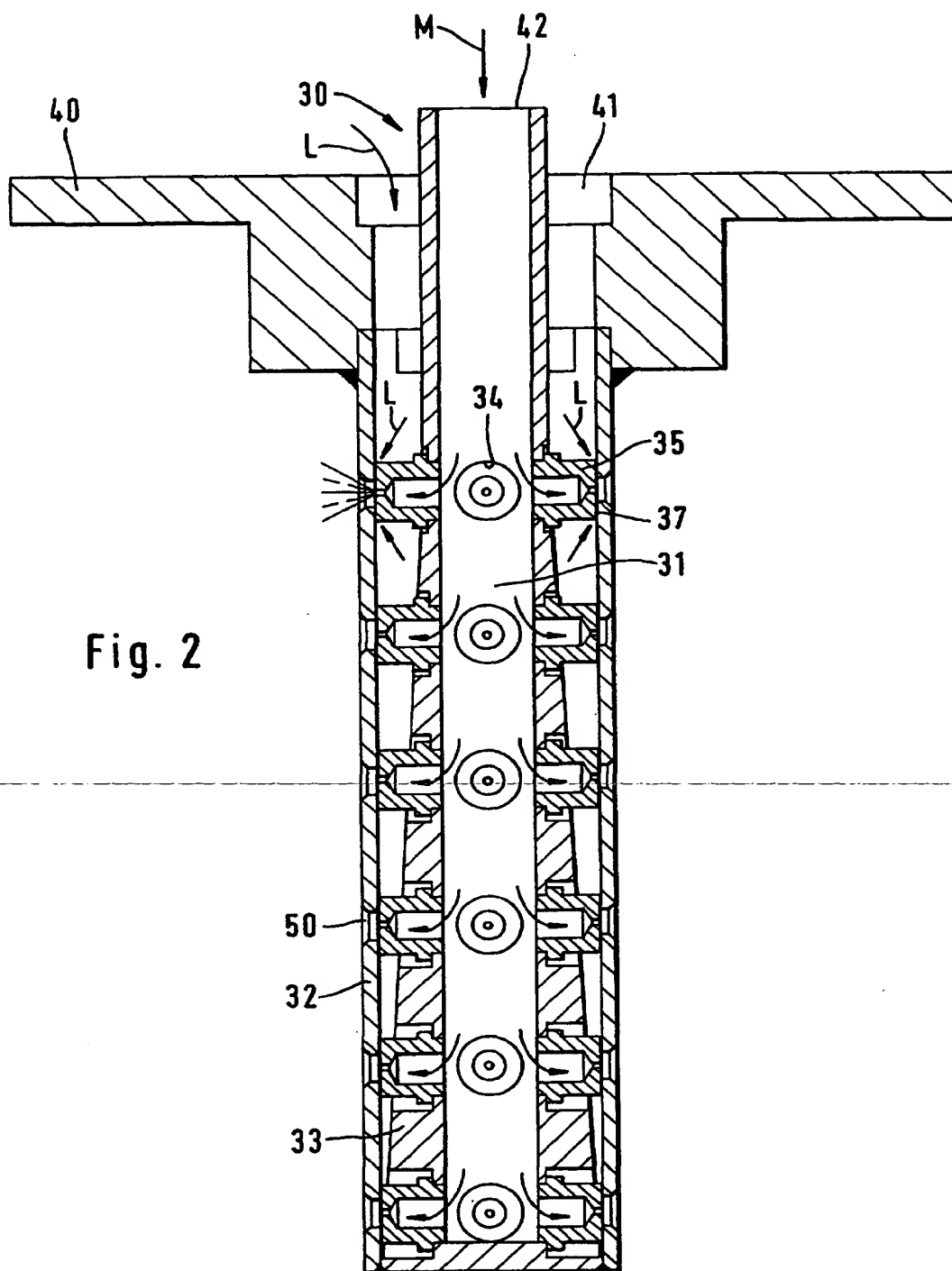


Fig. 1



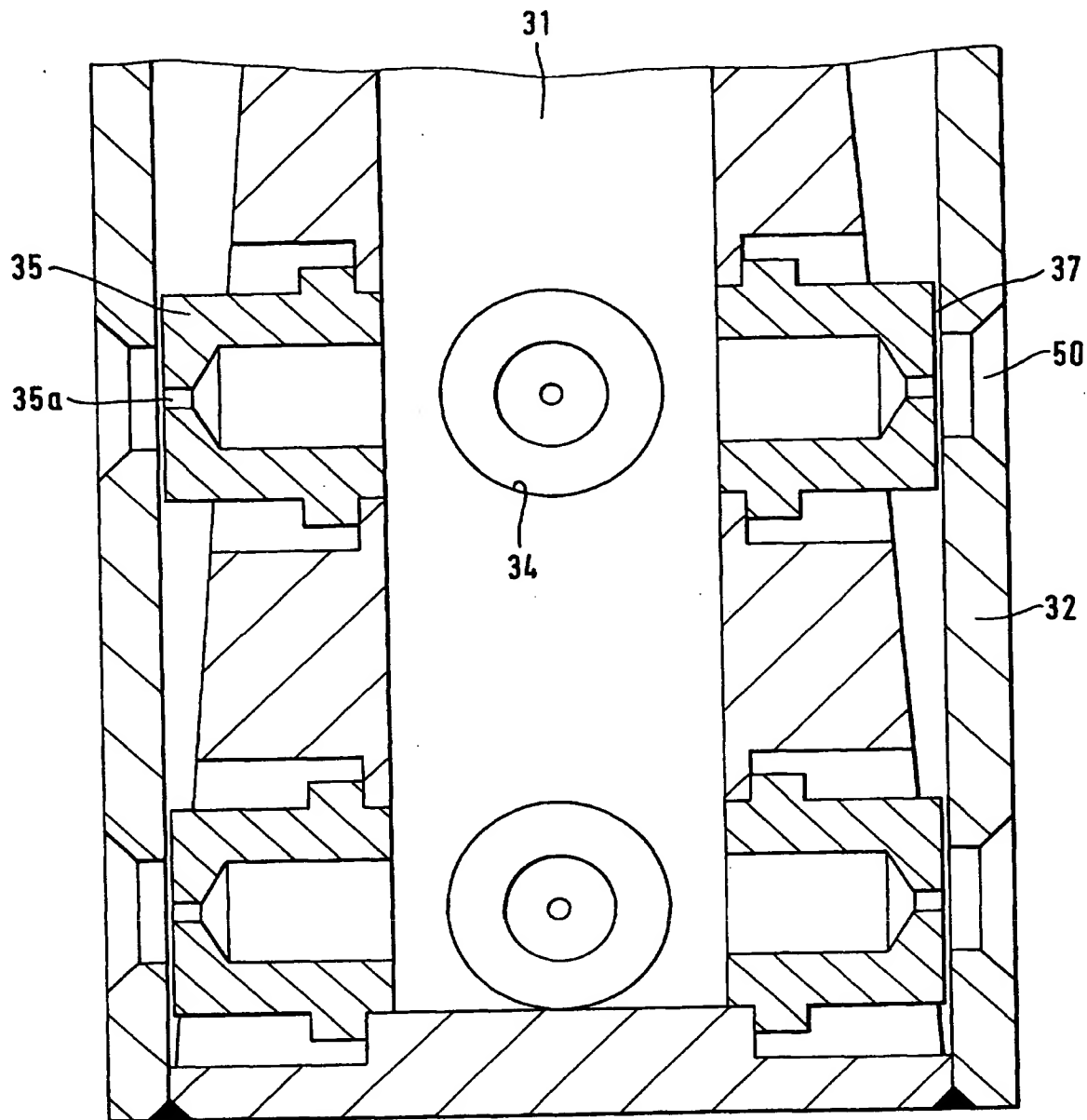


Fig. 3

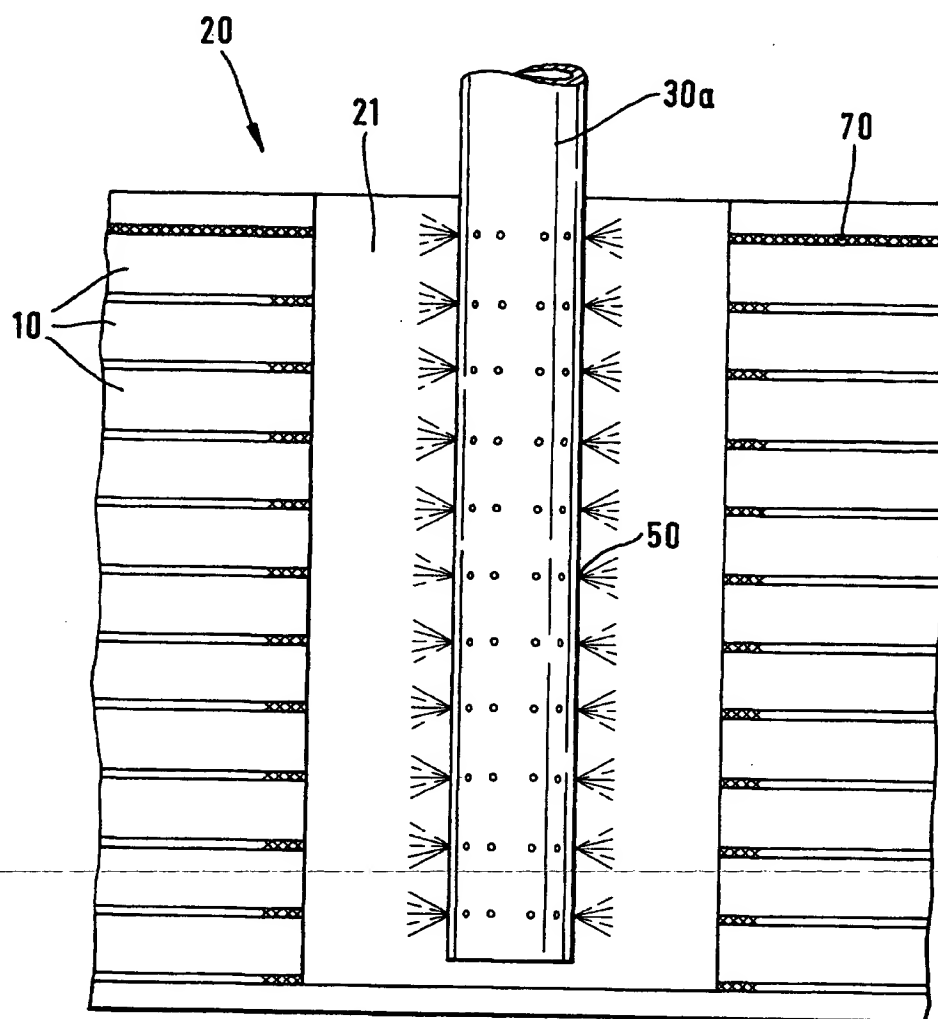


Fig. 4